

Новая система самоорганизованных квантовых точек GaSb/GaP

© Д.С. Абрамкин[¶], М.А. Путьято, А.К. Гутаковский, Б.Р. Семягин, В.В. Преображенский, Т.С. Шамирзаев

Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук, 630090 Новосибирск, Россия

(Получена 25 апреля 2012 г. Принята к печати 14 июня 2012 г.)

Обсуждается атомное и энергетическое строение самоорганизованных квантовых точек GaSb/GaP. Показано, что квантовые точки состоят из практически полностью релаксированного GaSb и имеют энергетическую структуру первого рода с основным электронным состоянием, принадлежащим непрямой долине зоны проводимости GaSb.

1. Введение

В настоящее время полупроводниковые гетероструктуры привлекают значительное внимание исследователей по причине их перспективности для создания новых полупроводниковых приборов, а также для решения фундаментальных задач физики твердого тела [1,2]. Полупроводниковые гетероструктуры можно разделить по типу энергетического строения на структуры первого рода, в которых носители заряда локализованы в одной области пространства, и на структуры второго рода, в которых носители заряда пространственно разделены [3]. Кроме того, носители заряда могут быть разделены и в пространстве квазиимпульсов. Практически все исследованные к настоящему времени гетероструктуры, в которых наблюдается разделение носителей заряда в пространстве квазиимпульсов, относятся к структурам второго рода, например, сверхрешетки GaAs/AlAs [4] или квантовые точки (КТ) Ge(Si)/Si [5]. В гетеросистемах первого рода, таких как квантовые ямы (In,Ga)As/GaAs и GaAs/AlGaAs [6,7], и электрон, и дырка находятся в центре зоны Бриллюэна пространства квазиимпульсов. Полупроводниковые гетероструктуры первого рода с разделением носителей заряда в пространстве квазиимпульсов исследованы значительно хуже. На данный момент доступно только небольшое число публикаций, посвященных экспериментальному исследованию гетеросистем InSb/GaSb [8], GaSb/AlSb [9], (In,Al)As/AlAs [10,11] и Ga(As,P)/GaP [12], в которых реализуется энергетическая структура такого типа. Расчеты строения энергетических зон для гетероструктур на основе бинарных соединений $A^{III}B^V$, выполненные в работах [13,14], показали, что энергетическая структура первого рода с разделением носителей заряда в пространстве квазиимпульсов может реализовываться в гетеросистеме GaSb/GaP. Рассогласование по параметру решетки для GaSb и GaP составляет 10.5%, что затрудняет получение гетероструктур GaSb/GaP, поэтому такие структуры до сих пор слабо исследованы. Авторы работ [15,16] рассматривали атомное строение пленки GaSb и вытянутых незаряженных островков GaSb, сформированных на поверхности GaP. Энергетический

спектр гетероструктур GaSb/GaP на данный момент экспериментально не исследовался.

В настоящей работе обсуждается атомное и энергетическое строение самоорганизованных КТ GaSb/GaP. Показано, что КТ состоят из полностью релаксированного GaSb и имеют энергетическое строение первого рода с основным электронным состоянием, принадлежащим непрямой долине зоны проводимости GaSb.

2. Детали эксперимента

Исследуемые структуры были выращены на несогласованной подложке GaAs ориентации (001) методом молекулярно-лучевой эпитаксии. При температуре 580°C на подложке был выращен слой GaP толщиной 1 мкм. Введение дислокаций несоответствия приводило к полной релаксации напряжений в этом слое. В работе [17] показано, что дислокации несоответствия локализованы главным образом в области гетерограницы GaAs/GaP, а их плотность на поверхности слоя GaP меньше, чем $10^6 - 10^7 \text{ см}^{-2}$. Сравнение спектров комбинационного рассеяния света и фотолюминесценции (ФЛ) слоя GaP/GaAs и эпитаксиального слоя GaP на подложке GaP также подтвердило высокое структурное совершенство и отсутствие дефектов в приповерхностной области слоя GaP на несогласованной подложке GaAs [17].

После роста GaP температура снижалась до 450°C и высаживались 2 монослоя GaSb (структура А). С помощью метода дифракции быстрых электронов на отражение при росте GaSb был зафиксирован переход от двумерного роста к трехмерному. Это позволяет полагать, что формирование КТ идет по механизму Странского–Крастанова с образованием смачивающего слоя. Полученный массив КТ зарастивался слоем GaP толщиной 50 нм при температуре 450°C. Дополнительно при той же температуре была выращена тестовая структура (В), содержащая слой GaP толщиной 50 нм без КТ.

Атомное строение КТ было исследовано методом высокоразрешающей просвечивающей электронной микроскопии (ВПЭМ). Для получения ВПЭМ-изображений использовался просвечивающий электронный микроскоп JEM-4000EX (400 кэВ). Стационарная ФЛ возбуждалась He–Cd-лазером с энергией кванта 3.81 эВ и плотностью мощности (P_{ex}), изменяемой в диапазоне

[¶] E-mail: demid@thermo.isp.nsc.ru

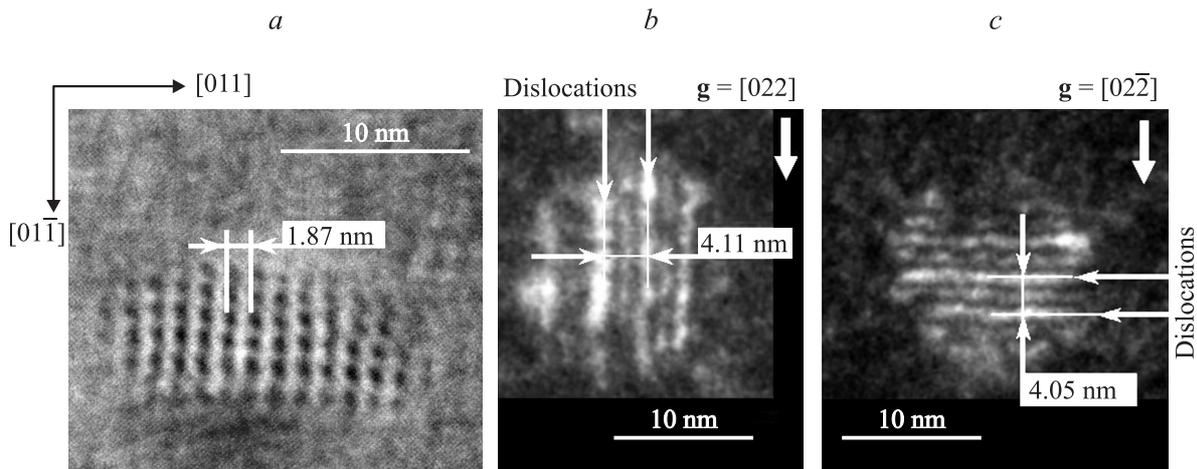


Рис. 1. *a* — планарное ВПЭМ-изображение структуры с КТ GaSb/GaP, полученное в азимуте (100); наблюдается муар от плоскостей (022) и (02 $\bar{2}$), характеризуемый периодом 1.87 нм. *b* — темнопольное изображение структуры с КТ GaSb/GaP (вектор дифракции $\mathbf{g} = [022]$); наблюдается контраст, обусловленный дислокациями несоответствия, залегающими в направлении $[01\bar{1}]$, и характеризуемый периодом 4.11 нм. *c* — темнопольное изображение структуры с КТ GaSb/GaP (вектор дифракции $\mathbf{g} = [02\bar{2}]$); наблюдается контраст, обусловленный дислокациями несоответствия, залегающими в направлении $[011]$, и характеризуемый периодом 4.05 нм.

0.23–25 Вт/см² при помощи набора оптических фильтров. Время-разрешенная ФЛ возбуждалась N₂-лазером с энергией кванта 3.68 эВ, частотой следования импульсов 1 кГц, длительностью импульса 7 нс и плотностью энергии в импульсе 1.75 мкДж/см², что соответствует плотности мощности в импульсе 250 Вт/см² и средней плотности мощности 1.75 мВ/см². Фотолюминесценция исследовалась с помощью двойного монохроматора и фотоэлектронного умножителя, работающего в режиме счета фотонов.

3. Атомное строение квантовых точек GaSb/GaP

На рис. 1, *a* представлено планарное ВПЭМ-изображение структуры А GaSb/GaP, полученное в азимуте (100). На изображении видна КТ. Важной особенностью этого ВПЭМ-изображения является наличие муара от плоскостей (022) и (02 $\bar{2}$) в области КТ, характеризуемого периодом 1.87 нм. Такой муар свидетельствует о различии параметров решетки КТ и матрицы. Период муара P_m определяется выражением

$$P_m = \frac{d_1 d_2}{|d_1 - d_2|}, \quad (1)$$

где d_1 и d_2 — межплоскостные расстояния для плоскостей (022). В свою очередь межплоскостное расстояние рассчитывается как

$$d = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}, \quad (2)$$

где a — параметр решетки, k , l и m — индексы Миллера, характеризующие плоскости, от которых наблюда-

ется муар. Таким образом, межплоскостное расстояние для семейства плоскостей (022) есть

$$d = \frac{a}{\sqrt{2^2 + 2^2}} = \frac{a}{2\sqrt{2}}, \quad (3)$$

а период муара равен

$$P_m = \frac{a_M a_{QD}}{2\sqrt{2}(a_{QD} - a_M)}, \quad (4)$$

где a_M — параметр решетки матрицы, a_{QD} — параметр решетки материала КТ. Зная период муара и принимая, что матрица состоит из ненапряженного GaP, можно вычислить параметр решетки материала КТ:

$$a_{QD} = \frac{2\sqrt{2} P_m a_{GaP}}{2\sqrt{2} P_m - a_{GaP}} = 6.08 \text{ \AA}. \quad (5)$$

Полученное значение параметра решетки КТ практически совпадает с параметром решетки ненапряженного GaSb (6.09 Å), что указывает на полную релаксацию упругих напряжений в КТ GaSb/GaP.

На рис. 1, *b* и *c* представлены темнопольные изображения структуры А GaSb/GaP, полученные в азимуте (100) и при различных векторах дифракции: $\mathbf{g} = [022]$ (*b*) и $[02\bar{2}]$ (*c*). На обоих изображениях наблюдается контраст, обусловленный дислокациями, для которых выполняется условие наблюдения ($\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \neq 0$). Как видно, такие дислокации залегают в направлениях $[01\bar{1}]$ (*b*), $[011]$ (*c*). Период следования дислокаций составляет $P_{dis}^{011} = 4.11$ нм (*b*) и $P_{dis}^{011} = 4.05$ нм (*c*). Таким образом, можно утверждать, что в процессе релаксации упругих напряжений ввелась сетка ломеровских дислокаций, расположенная в плоскости (100). Известно, что период

следования дислокаций выражается как

$$P_{\text{dis}} = \frac{b_e}{\delta}, \quad (6)$$

где b_e — величина краевой компоненты вектора Бюргера в плоскости гетерограницы, δ — величина пластической деформации. Следовательно, по полученным микроскопическим изображениям можно рассчитать δ :

$$\delta = \frac{b_e}{P_{\text{dis}}}. \quad (7)$$

Краевая компонента вектора Бюргера ломеровской дислокации равна

$$b_e = \frac{a}{\sqrt{2}}. \quad (8)$$

Отсюда, используя среднее значение периода следования дислокаций $P_{\text{dis}} = 40.8 \text{ \AA}$, найдем величину пластической деформации:

$$\delta = \frac{a}{P_{\text{dis}}\sqrt{2}} = \frac{6.09 \text{ \AA}}{40.8 \text{ \AA}\sqrt{2}} = 0.1055, \quad (9)$$

что практически совпадает с величиной рассогласования GaSb и GaP по параметру решетки:

$$f = \frac{a_{\text{GaSb}} - a_{\text{GaP}}}{a_{\text{GaSb}}} = 0.1050. \quad (10)$$

Таким образом, можно утверждать, что все упругие напряжения в КТ релаксировали за счет введения сетки ломеровских дислокаций.

Спектры стационарной ФЛ структуры с КТ Ga(Sb,P)/GaP (А) и тестовой структуры без КТ (В), измеренные при 5 К и плотности мощности возбуждения 25 Вт/см^2 , представлены на рис. 2. Как видно из рисунка, в спектре ФЛ тестовой структуры В присутствует полоса, обозначенная GaP и связанная с донорно-акцепторной рекомбинацией, что типично для непрямозонных полупроводников, к которым относится GaP [18]. В спектре структуры А появляются дополнительная группа полос ФЛ, обозначенная на рисунке QD, связываемая нами с рекомбинацией экситонов в смачивающем слое и КТ GaSb/GaP. Интегральные интенсивности спектров ФЛ тестовой структуры и структуры с КТ сравнимы, что позволяет делать выводы о высокой эффективности излучательной рекомбинации в исследуемых релаксированных КТ GaSb/GaP. Следовательно, релаксация упругих напряжений в КТ, проходящая за счет введения дислокаций, не сопровождается образованием центров безызлучательной рекомбинации. В работах [19–22] было теоретически и экспериментально показано, что ядро ломеровской дислокации в Si, Ge и соединениях $A^{III}B^V$ со структурой сфалерита может не содержать „оборванных“ атомных связей, являющихся центрами безызлучательной рекомбинации. Низкая концентрация центров безызлучательной рекомбинации в релаксированных КТ GaSb/GaP свидетельствует в пользу того, что релаксация упругих напряжений в исследуемых КТ идет за счет введения сетки ломеровских дислокаций.

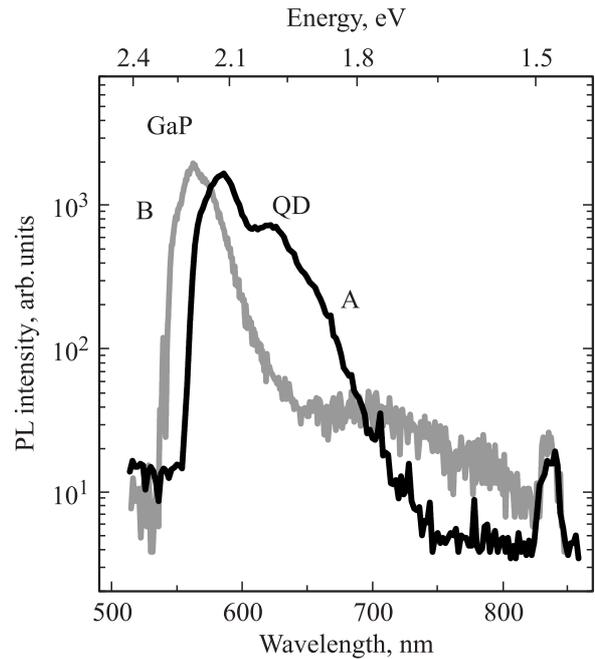


Рис. 2. Спектры стационарной фотолуминесценции (PL) тестовой структуры В, содержащей эпитаксиальный слой GaP, и структуры А с КТ GaSb/GaP при температуре 5 К и плотности мощности возбуждения 25 Вт/см^2 .

4. Энергетическое строение квантовых точек Ga(Sb,P)/GaP

В работах [23,24] была предложена методика, позволяющая однозначно идентифицировать гетероструктуры второго рода посредством измерения зависимости положения максимума полосы ФЛ от плотности мощности возбуждающего лазерного излучения (P_{ex}). В этих работах было теоретически и экспериментально показано, что повышение P_{ex} приводит к сдвигу полосы экситонной ФЛ в высокоэнергетическую область спектра, пропорциональному корню кубическому от P_{ex} . Это смещение обусловлено изменением формы локализирующего потенциала гетероструктуры при ее заполнении носителями заряда [23,24]. С другой стороны, в гетероструктурах первого рода при сравнимых P_{ex} положение полосы экситонной ФЛ от P_{ex} не зависит [10,11].

Для того чтобы определить принадлежность КТ GaSb/GaP к структурам первого или второго рода, изучалась зависимость энергетического положения полосы экситонной ФЛ от плотности мощности возбуждения фотолуминесценции. Спектры стационарной ФЛ структуры с КТ GaSb/GaP, измеренные при различных плотностях мощности возбуждения P_{ex} , приведены на рис. 3. Как видно из рисунка, при уменьшении P_{ex} почти на 2 порядка величины положение максимума полос, связанных с рекомбинацией экситонов в смачивающем слое и КТ, не испытывает смещения, что позволяет отнести КТ GaSb/GaP к гетероструктурам первого рода.

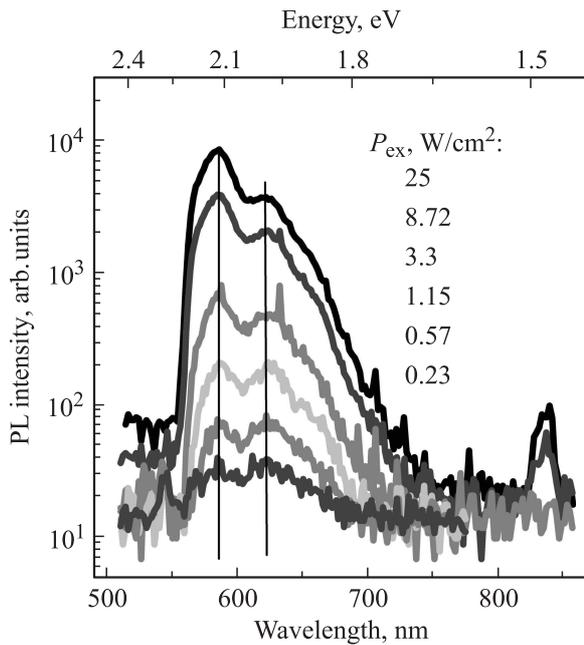


Рис. 3. Спектры стационарной фотолуминесценции (PL) структуры с КТ GaSb/GaP при температуре 5 К и различных плотностях мощности возбуждения.

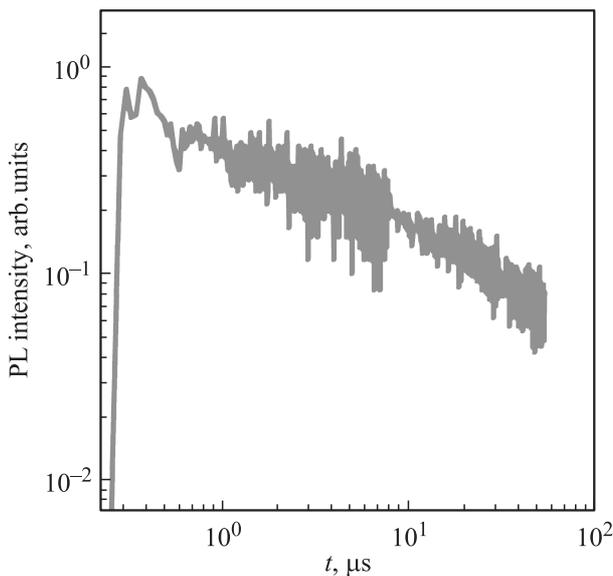


Рис. 4. Кинетика затухания фотолуминесценции (PL) КТ GaSb/GaP, измеренная в максимуме полосы QD при температуре 5 К.

Нормированная кривая затухания ФЛ для структуры с КТ GaSb/GaP, измеренная на длине волны, соответствующей максимуму полосы ФЛ, представлена на рис. 4. Кинетика ФЛ во времени t неэкспоненциальна и описывается законом, близким к $1/t^\alpha$. Неэкспоненциальность затухания экситонной ФЛ в массиве КТ связана с тем, что мы наблюдаем сумму большого количества моноэкспоненциальных кинетик от экситонов, излучаю-

щих на одной длине волны, но локализованных в КТ различного размера и состава, с разными временами излучательной рекомбинации [25]. Несмотря на то что рекомбинирующие носители заряда локализованы в одной области пространства, ФЛ наблюдается даже спустя время ~ 100 мкс после импульса возбуждения. Это значительно дольше, чем время жизни экситона в гетероструктурах первого рода (таких как (In,Ga)As/GaAs), которое составляет ~ 1 нс [26]. Лежащее в микросекундном диапазоне времен затухание экситонной ФЛ в КТ GaSb/GaP первого рода свидетельствует о том, что основное электронное состояние КТ принадлежит непрямой долине зоны проводимости GaSb. Поскольку квазиимпульс экситона, составленного из электрона, принадлежащего в боковой долине зоны проводимости, и дырки, находящейся в центре зоны Бриллюэна, существенно больше, чем импульс фотона с такой же энергией, закон сохранения квазиимпульса накладывает ограничения на излучательную рекомбинацию экситонов в таких структурах. Как было показано ранее для непрямозонных квантовых ям и квантовых точек первого рода InAs/AlAs, выполнение закона сохранения квазиимпульса в процессе излучательной рекомбинации может идти либо за счет взаимодействия с фононами, либо за счет взаимодействия с гетерограницей [10,11,25]. Оба эти механизма рекомбинации приводят к длительным временам затухания экситонной ФЛ [10,25]. В спектрах ФЛ КТ GaSb/GaP фоннных повторений обнаружено не было, следовательно, основным механизмом рассеяния квазиимпульса в КТ GaSb/GaP в процессе излучательной рекомбинации является взаимодействие экситона с гетерограницей КТ/матрица.

5. Заключение

Показано, что полученные методом молекулярно-лучевой эпитаксии самоорганизованные КТ GaSb/GaP состоят из практически полностью релаксированного GaSb. Показано, что релаксация упругих напряжений произошла за счет введения сетки ломеровских дислокаций. Установлено, что КТ имеют зонную структуру первого рода с основным электронным состоянием, принадлежащим непрямой долине зоны проводимости GaSb.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, гранты № 10-02-00240 и 10-02-00077, а также фонда некоммерческих программ „Династия“.

Список литературы

- [1] D. Bimberg, M. Grundmann, N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures* (Wiley, N.Y., 1999).
- [2] *Semiconductor Quantum Dots. Physics, Spectroscopy and Applications*, ed. by Y. Matsumoto T. Takagahara [Springer Series in NanoScience and Technology (Springer-Verlag, Berlin, (2002))].

- [3] Ж.И. Алфёров. ФТП, **32** (1), 3 (1998).
- [4] G. Danan, B. Etienne, F. Molloy, R. Planel, A.M. Jean-Louis, F. Alexandre, B. Jusserand, G. Le Roux, J.Y. Marzin, H. Savary, B. Sermage. Phys. Rev. B, **35**, 6207 (1987).
- [5] O.G. Schmidt, K. Eberl, Y. Rau. Phys. Rev. B, **62**, 16715 (2000).
- [6] M. Grundmann, O. Stier, D. Bimberg. Phys. Rev. B, **52**, 11969 (1995).
- [7] K. Brunner, U. Bockelmann, G. Abstreiter, M. Walther, G. Bohm, G. Trankle, G. Weimann. Phys. Rev. Lett., **69**, 3216 (1992).
- [8] S.I. Rybchenko, R. Gupta, K.T. Lai, I.E. Itskevich, S.K. Haywood, V. Tasco, N. Deguffroy, A.N. Baranov, E. Tournie. Phys. Rev. B, **76**, 193309 (2007).
- [9] T. Wang, F. Kieseling, A. Forchel. Phys. Rev. B, **58**, 3594 (1998).
- [10] T.S. Shamirzaev, A.M. Gilinsky, A.K. Kalagin, A.V. Nenashev, K.S. Zhuravlev. Phys. Rev. B, **76**, 155309 (2007).
- [11] T.S. Shamirzaev, A.V. Nenashev, A.K. Gutakovskii, A.K. Kalagin, K.S. Zhuravlev, M. Larsson, P.O. Holtz. Phys. Rev. B, **78**, 085323 (2008).
- [12] T.S. Shamirzaev, D.S. Abramkin, A.K. Gutakovskii, M.A. Putyato. Appl. Phys. Lett., **97**, 023108 (2010).
- [13] M.-E. Pistol, C.E. Pryor. Phys. Rev. B, **80**, 035316 (2009).
- [14] Т.С. Шамирзаев. ФТП, **45** (1), 97 (2011).
- [15] S. El Kazzi, L. Desplanque, C. Coinon, Y. Wang, P. Ruterana, X. Wallart. Appl. Phys. Lett., **97**, 192111 (2010).
- [16] Y. Wang, P. Ruterana, H.P. Lei, J. Chen, S. Kret, S. El Kazzi, L. Desplanque, X. Wallart. J. Appl. Phys., **110**, 043539 (2011).
- [17] T.S. Shamirzaev, M.A. Putyato, A.B. Talochkin, D.S. Abramkin, A.K. Gutakovskii, B.R. Semyagin, V.V. Preobrazhenskii. J. Cryst. Growth (to be published).
- [18] A.T. Wink, A.J. Bosman, J. A. van der Does de Bye, R.C. Peters. Sol. St. Commun., **7**, 1475 (1969).
- [19] J. Hornstra. J. Phys. Chem. Sol., **5**, 129 (1958).
- [20] A. Bourret, J. Desseaux, A. Renault. Phil. Mag. A, **45**, 1 (1982).
- [21] A. Vila, A. Cornet, J.R. Morante, M. Loubradou, R. Bonnet, Y. Gonzalez, L. Gonzalez, P. Ruterana. Phil. Mag. A, **71**, 85 (1994).
- [22] J.N. Stirman, P.A. Crozier, D.J. Smith, F. Phillipp, G. Brill, S. Sivanathan. Appl. Phys. Lett., **84**, 2530 (2004).
- [23] N.N. Ledentsov, J. Bohrer, M. Beer, F. Heinrichsdorff, M. Grundmann, D. Bimberg. Phys. Rev. B, **52**, 14058 (1995).
- [24] F. Hatami, N.N. Ledentsov, M. Grundmann, J. Bohrer, F. Heinrichsdorff, M. Beer, D. Bimberg, S.S. Ruvimov, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich, U. Richter, S.V. Ivanov, B.Ya. Meltser, P.S. Kop'ev, Zh.I. Alferov. Appl. Phys. Lett., **67**, 656 (1995).
- [25] T.S. Shamirzaev, J. Debus, D.S. Abramkin, D. Dunker, D.R. Yakovlev, D.V. Dmitriev, A.K. Gutakovskii, L.S. Braginsky, K.S. Zhuravlev, M. Bayer. Phys. Rev. B, **84**, 155318 (2011).
- [26] J.W. Tomm, T. Elsaesser, Yu.I. Mazur, H. Kissel, G.G. Tarasov, Z.Ya. Zhuchenko, W.T. Masselink. Phys. Rev. B, **67**, 045326 (2003).

Редактор Л.В. Шаронова

Novel system of self-assembled GaSb/GaP quantum dots

D.S. Abramkin, M.A. Putyato, A.K. Gutakovskii,
B.R. Semyagin, V.V. Preobrazhenskii, T.S. Shamirzaev

A.V. Rzhzanov Institute of Semiconductor Physics,
Siberian Branch of Russian Academy of Sciences,
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract The atomic structure and energy spectrum of self-assembled GaSb/GaP quantum dots have been experimentally studied. It was shown, that the quantum dots contain fully relaxed GaSb. The band alignment of the GaSb/GaP quantum dots is shown to be of I type with ground electronic state at the indirect valley of the GaSb conduction band.